Юрий Курочкин,

заведующий научным центром «Фундаментальные взаимодействия и астрофизика» Института физики им. Б.И. Степанова НАН Беларуси, доктор физико-математических наук, профессор

Владамир Кабанов,

главный научный сотрудник центра, доктор физико-математических наук, доцент

Сергей Андрухович, научный сотрудник центра

Александр Науменко, старший научный сотрудник центра, кандидат физико-математических наук

Дмитрий Шелковый, заместитель заведующего центром, кандидат физико-математических наук

Евгений Сапрунов, научный сотрудник центра

Леонид Близнюк, ведущий инженер отдела научноорганизационного и конструкторского сопровождения

Автономные погружные гаммаспектрометры Nal(TI) и Srl₂(Eu²⁺)

Работы по созданию автономных погружных гамма-спектрометров в Институте физики НАН Беларуси начались в 2014 г. На этом этапе они осуществлялись в рамках научнотехнического сотрудничества с Институтом океанографического приборостроения Академии наук провинции Шандунь (КНР) по контракту «Создание гамма-спектрометра морского базирования погружного типа». Стояла задача разработать гамма-спектроскопический комплекс, предназначенный для длительного подводного мониторинга радиационной обстановки по месту (*in situ*) в автономном режиме с высокой чувствительностью, постоянной обработкой и беспроводной передачей накопленных данных.

аряду с требованиями работы таких гамма-спектрометров в сложных природных условиях (в определенном температурном диапазоне, при высоких давлениях на больших глубинах и химической агрессивности, например, морской воды), прибор должен надежно функционировать в автоматизированном режиме,

функционировать в автоматизированном режиме, постоянно накапливая, обрабатывая и передавая информацию, автоматически перестраиваясь при изменении температуры окружающей среды. Кроме того, такие гамма-спектрометры должны надежно справляться с основной задачей идентификации и измерения концентрации радионуклидов в водной среде [1–10].

На этом этапе в Институте физики НАН Беларуси был сконструирован для заказчика гамма-спектрометр высокого разрешения на базе приобретенного детектора со сцинтиллятором NaI(Tl) (*puc.* 1). Была проведена его энергетическая и температурная

НАУКА СО ЗНАКОМ КАЧЕСТВА



Рис. 1. Гамма-спектрометр высокого разрешения на базе детектора со сцинтиллятором Nal(Tl), созданный для Института океанографического приборостроения Академии наук провинции Шандунь

калибровка, спроектирован блок управления, корпус для работы прибора на больших (до 400 м) глубинах. Температурный диапазон, в котором планировалось его использование, находился в пределах от -10 C^0 до $+50 \text{ C}^0$. Был получен ряд научнотехнических решений и приобретен новый опыт как по разработке отдельных узлов и блоков, так и их калибровке и сопряжению в единую систему [1, 8–10].

Кроме того, в процессе создания прибора была разработана программа обработки и передачи данных, проведено моделирование функций гаммаспектрометра. Интересно отметить, что последнее реализовано с помощью пакета программ GEANT4, который применяется на детекторах в крупных ускорительных центрах в проектах с участием наших сотрудников.

Основные технические характеристики, такие как чувствительность и энергетическое разрешение, соответствовали на момент создания (2016 г.) параметрам лучших аналогичных зарубежных спектрометров с NaI(TI)-детектором (KATERINA, SARA) и превосходили отечественные MKC-ФЕ6104ДМ, MKC-AT6104ДМ.

Область применения разработки предполагала измерение удельной гамма-активности радионуклидов в водной среде при экологическом мони-



Рис. 2. Спектр фона чистой воды, измеренный за 7,5 дня погружным гамма-спектрометром, опущенным в БАК



Рис. 3. А) спектр ¹³⁹Се,¹³⁷Сs и ⁴⁰К, снятый за 3,8 дня, и соответствующий спектр фона; Б) тот же спектр ¹³⁹Се,¹³⁷Сs и ⁴⁰К с вычтенным фоном торинге и паспортизации отходов. Прибор прошел успешные испытания на сконструированном в институте стенде и натурные – на базе заказчика.

Параллельно учеными проводились экспериментальные и теоретические исследования, обработка результатов экспериментов, математическое моделирование. Таким образом, за это время были реализованы на практике: общая конструкция гамма-спектрометра и погружного блока; контроллер для управления анализатором блока детектирования; блок управления; программное обеспечение для управления анализатором, съема и обработки спектров.

Методом Монте-Карло с помощью программного обеспечения GEANT4 созданным гаммаспектрометром было выполнено численное моделирование процесса детектирования радиационной обстановки с заданными параметрами. По его результатам получена расчетная зависимость объемной эффективности регистрации от энергии.

Расчетные данные по объемной эффективности регистрации сравнивались с экспериментальными данными, полученными при измерении с помощью разработанного гамма-спектрометра заданных образцов радиоактивных растворов в эксперименте на испытательном стенде Блок автоматической калибровки БАК-8м³ с рабочим объемом воды 7,74 м³ для трех значений энергий: 169 кэВ (Се-139), 661 кэВ (¹³⁷Cs) и 1461 кэВ (⁴⁰K).

В гамма-спектрометре была также встроена система стабилизации усиления, прокалиброванная на тепловой камере. Итогом работ стало то, что новый прибор прошел тестирование на соответствие ТЗ на территориях исполнителя и заказчика.

Проект выполнялся в два этапа. Целью второго из них было исследование зависимости параметров предоставленного заказчиком погружного NaI(Tl)-детектора от температуры и определение зависимости его объемной эффективности регистрации от энергии гамма-квантов и температуры.

Детектор характеризовался закрытой (неизвестной) архитектурой электронных компонент, управляющего программного обеспечения и протоколов передачи данных. Для более полного понимания свойств устройства параллельно проводилось исследование погружного гамма-спектрометра, специально собранного в Институте физики на базе детектора с более открытой архитектурой с кристаллом NaI такого же размера (3"×3").



Рис. 4. Двухкристальный гамма-спектрометр высокого разрешения на базе детекторов со сцинтиллятором Srl₂ (Eu), созданный в Институте физики НАН Беларуси



Puc. 5. Спектр ¹³⁹Ce, ¹³⁷Cs, ⁸⁸Y и ²³²Th (регистрация по его дочерним продуктам распада ²²⁸Ac, 212Bi,²⁰⁸Tl и др.) с детектора Srl₂–1 в логарифмическом масштабе. Температура T=25,5 °C, время набора 20 мин.

НАУКА СО ЗНАКОМ КАЧЕСТВА



справа – плавающий буй с электронными компонентами

Экспериментальная калибровка эффективностей регистрации на испытательном стенде БАК-8м³

Кратко опишем, как получаются спектры, по которым можно судить о наличии в среде тех или иных радионуклидов, а также оценивать их концентрации, что, собственно, и является целью использования гамма-спектрометра.

Для проверки результатов моделирования объемной эффективности регистрации погружным гаммаспектрометром была спроектирована и частично апробирована система автоматизации стенда БАК-8м³ для калибровки погружных спектрометров по эффективности регистрации спектров гаммаизлучения. Выполнен следующий эксперимент.

В пластиковую емкость БАК-8м³ было набрано 7,74 м³ чистой воды. Затем в нее был опущен погружной блок гамма-спектрометра таким образом, чтобы детектор располагался в середине объема воды. Толщина водяного слоя с каждой стороны составила более 1 м.

На первом этапе эксперимента был измерен спектр фона в течение 648 635 секунд (~7,5 дня) (*рис. 2*), в котором видны линии естественных радионуклидов ⁴⁰K (1461,6 кэВ), ²¹⁴Bi (609, 1729, 1764, 2118, 2204), ²⁰⁸Tl (583, 2614) и аннигиляционная линия 511 кэВ.

Затем в БАК вносились последовательно образцовые радиоактивные растворы (ОРР): 1 л 139 Се (96150 Бк), 1 л 137 Сs (7565 Бк) и 12 л раствора с 3 кг КСl (49500 Бк). Их активность и удельная активность были выбраны таким образом, чтобы не превышать минимально значимых. Это позволило проводить эксперимент в лаборатории без специальных требований по радиационной безопасности.

Перед добавлением растворов для предотвращения оседания растворенных в них солей на стенки емкости и погружной блок гамма-спектрометра в бак было добавлено 2,8 кг азотной кислоты (0,007 N). После введения каждого раствора в нем проводи-



лось перемешивание воды с помощью воздушного компрессора, а затем – измерение спектра погружным гамма-спектрометром. В ходе этих замеров раствор в емкости 2 раза в сутки перемешивался дополнительно.

На *рис. За* приведен спектр с изотопами ¹³⁹Се, ¹³⁷Сs и ⁴⁰K, снятый в течение 327 010 с (3,8 дня), и соответствующий ему спектр фона. На *рис. 36* – спектр с изотопами ¹³⁹Се, ¹³⁷Сs и ⁴⁰K с вычтенным спектром фона.

Гамма-спектрометры Института физики НАН Беларуси

После успешного выполнения первого этапа договора с китайскими коллегами Президиум Национальной академии наук Беларуси принял решение о финансировании научного проекта «Разработка погружного двухкристального сцинтилляционного гамма-спектрометра с улучшенным энергетическим разрешением».

В чем же заключалась суть очередного проекта? Традиционно в погружных гамма-спектрометрах использовался тип детектора на основе кристалла NaI(Tl). Наибольшая чувствительность таких однокристальных приборов с энергетическим разрешением не ниже 7% (для гамма-квантов с энергией 661 кэВ) достигается у цилиндрических кристаллов с максимально возможными для данного разрешения размерами 3×3". Таким образом, для данного вида прибора речь идет о пределе чувствительности.

Тем не менее к началу работы по проекту появилось несколько новых типов кристаллов, имеющих более высокое, чем у NaI, энергетическое разрешение (в 1,5–2 раза) и низкий собственный фон. Однако технология их получения на тот момент еще не была полностью отработана. Поэтому для увеличения чувствительности решено было использовать несколько детекторов доступной величины



в одном приборе, что, однако, увеличивает его стоимость. Для отработки этой методики в проекте было предложено ограничиться двумя детекторами, а их количество в более чувствительном (многодетекторном) приборе определялось путем компромисса между стоимостью и степенью чувствительности. Следовательно, проблема требовала дополнительного изучения.

Для работы были выбраны два детектора на основе сцинтилляционных кристаллов SrI₂(Eu) размера 1,5"×1,5"².

В результате реализации проекта был создан двухкристальный гамма-спектрометр (*рис. 4*, *таблица*) и выполнены следующие работы:

- сконструирован экспериментальный образец гамма-спектрометра;
- сформирована и собрана (из производимых серийно по ТЗ заказчика электронных блоков) его система регистрации;
- разработано программное обеспечение;
- проведено математическое моделирование блоков регистрации и расчетным методом определена зависимость объемной эффективности регистрации от энергии гаммаквантов для детекторов (SrI2(Eu));
- выполнена калибровка блоков регистрации спектрометра в термокамере, необходимая для стабилизации энергетической шкалы;
- спроектирована и частично реализована система автоматизации стенда БАК-8000л для калибровки погружных спектрометров по эффективности регистрации. На рис. 5 в качестве примера представлен спектр, полученный детектором SrI₂-1.

В дальнейшем, уже после завершения проекта, была проведена сборка, отладка и доведение погружного двухдетекторного *in situ* гамма-спектрометра, состоящего из поверхностного и подводного модулей, до состояния, пригодного к полевым измерениям. В частности, разработанный поверхностный



Тип сцинтиллятора	Srl2 (Eu)
Количество детекторов	2
Размер кристаллов	Ø 38 мм x 38 мм
Энергетическое разрешение по линии 662 кэВ	3,5%
Энергетический диапазон измерения спектров	от 40 до 3000 кэВ
Размер измеряемого спектра	4096 каналов
Предел детектирования для ¹³⁷ Cs за 24 ч	≤0,04 Бк/л
Число каналов в спектре (выбирается пользователем)	256, 512, 1024, 2048, 4096
Рабочая температура	от –10 °С до +50 °С
Максимальная рабочая глубина	400 м
Напряжение питания	от 9 до 18 В (DC)
Потребляемая мощность	≤2 Вт
Интерфейс связи	RS-485, Ethernet
Масса	8 кг
Стабильность: сдвиг спектрального пика ¹³⁷ Cs за 24 ч	≤±1,0 %
Периодичность калибровки системы	≥1 года
Идентификация и количественное определение ү-излучающих радионуклидов, содержащихся в морской воде	¹³¹ I, ¹³⁴ Cs, ¹³⁷ Cs, ⁶⁰ Co, 40К и др.
Измеряемая максимальной активность для ¹³⁷ Cs (в Бк/л)	>50 кБк
Погрешность измерения	от ±8,0 до ±10,0%
Максимальная глубина погружения погружных герметичных корпусов	400 м
Максимальное время работы от аккумулятора в автономном режиме	10 дней

Таблица. Характеристики нового гамма-спектрометра

модуль этого прибора (плавающий буй с электронными компонентами) включает: герметичный пластиковый корпус с разборным внутренним наполнителем; внешний крепежный каркас и крепежную систему, удерживающую подводный модуль на заданной глубине; якорную систему; солнечные панели в регулируемых крепежных рамах; 3G/4G-модем и Ethernet-WiFi-роутер для связи с внешним миром и подводным модулем; аккумулятор, контроллер заряда с Bluetooth-модулем, контроллер разряда и электронный ключ для оптимизации энергопотребления. Также доработке подверглись подводные детекторные и микрокомпьютерный блоки, включая программное обеспечение последнего.

Были проведены непрерывные месячные полевые испытания погружного двухдетекторного *in situ* гамма-спектрометра (с NaI(Tl) и SrI₂(Eu²⁺) сцинтилляционными детекторами) в Лебяжьем озере Ботанического сада НАН Беларуси с измерениями гамма-спектров растворенных в воде естественных радионуклидов. По результатам определены узлы и компоненты гамма-спектрометра, нуждающиеся в доработке. Результаты измерений автоматически передавались на специально созданный сайт.

Анализ полученных в результате испытаний гамма-спектров осуществлялся с помощью собственного разработанного программного обеспечения. В частности, на первом шаге проводилась уточняющая (автоматическая) калибровка энергетической шкалы детекторов по хорошо выраженным фотопикам, ассоциированным с позитронной аннигиляцией и радионуклидами ⁴⁰К, ²⁰⁸Tl и ²¹⁴Ві. После этого применялись более утонченные алгоритмы поиска и идентификации фотопиков и радионуклидов, использующие, в частности: меньшую величину ROI, сравнение гауссовых ширин фотопиков с полученной ранее калибровочной шириной (разрешением детекторов) для данной энергии гамма-кванта; двух-гауссову декомпозицию широких фотопиков, вычисление и вычитание гладкой фоновой подставки спектра и т.д. Идентифицированы следующие естественные радионуклиды (и их фотопики): е+е- аннигиляция, ⁴⁰K, ²⁰⁸Tl, ²¹⁴Bi, ²¹⁴Pb, ²¹²Pb, ²²⁸Ac, ²²⁶Ra. Определялись концентрации активности растворенных радионуклидов и MDA (минимальная детектируемая активность).

На основе анализа выполненных ранее экспериментов проведено сравнительное исследование погружных *in situ* гамма-спектрометров NaI(Tl)

и SrI₂(Eu²⁺) в широком диапазоне температур, в частности особенностей применения методов пассивной и активной температурной стабилизации спектров. Часть результатов публиковалась [1, 8–10].

Приборы такого типа важны для контроля экологической обстановки на территории страны. Необходимо, чтобы в их разработке участвовали молодые сотрудники (студенты, магистранты). Тем не менее нужно учитывать, что для успешного проведения таких работ требуется довольно значительное финансирование.

Исполнители благодарят директора Центрального ботанического сада НАН Беларуси, академика Ф.И. Привалова за разрешение проведения натурных испытаний на Лебяжьем озере и ведущего научного сотрудника, кандидата биологических наук Б.Ю. Аношенко – за помощь в организации непосредственно испытаний.

СПИСОК ИСПОЛЬЗОВАННЫХ ИСТОЧНИКОВ

- A. Naumenko [et al.]. Autonomous Nal(TI) gamma-ray spectrometer for in situ underwater measurements // Nuclear Inst. and Methods in Physics Restarch, A (2018). P. 97–109.
- Zhukouski A. [et al.]. Gamma-spectrometer for water areas and bottom sediments radiation monitoring // Приборы и методы измерений. 2016. Т. 7, №3. С. 256–261.
- Kilel K.K. [et al.]. A low-cost delta underwater gamma system (DUGS) for in-situ measurement of natural radionuclides in aquatic sediments // https://doi. org/10.1007/s10967-022-08701-7.
- Vlastoua R. [et al.]. Monte Carlo simulation of g-ray spectra from natural radionuclides recorded by a Nal detector in the marine environment // Applied Radiation and Isotopes 64 (2006). P. 116–123.
- Patiris D.L., Pensieri S., Tsabaris C. Rainfall Investigation by Means of Marine In Situ Gamma-ray Spectrometry in Ligurian Sea, Mediterranean Sea, Italy // https://doi. org/10.3390/jmse9080903.
- Anistratenko S.S., Gareev G.A., Kuznetcova E.Y. Detection and identification of radionuclides under water Marine // Intellectual technologies. 2020. №3, part 1. P. 155–163.
- Lunardon M. [et al.]. Development of a prototype of monitor for alpha and beta radiation in water using new silicone-based contamination-safe detectors // EPJ Conferences 288(3):06005 November 2023. DOI: 10.1051/epjconf/202328806005
- Андрухович С.К. [и др.]. Автономной комплекс калибровки погружного Srl₂ гамма-спектрометра // Материалы XII Междунар. науч.-тех. конф. «Квантовая электроника» (Минск, 18–22 ноября 2019 г.).– Минск, 2019. С. 188–190.
- Naumenko A. [et al.]. Submersible in situ Nal(TI) gamma spectrometers: methods of passive and active temperature stabilization of spectra, temperature dependences of characteristics // Nonlinear Dynamics and Applications. Vol. 27. 2021. P. 331–337. Proceedings of the Twenty eight Anniversary Seminar NPCS'2021, Minsk, May 18–21, 2021 / редкол.: В.А. Шапоров [и др.]; под ред. В.А. Шапорова, А.Г. Трифонова; Объединенный институт энергетических и ядерных исследований – «Сосны» НАН Беларуси. – Минск, 2021.
- Naumenko A., Andrukhovich S., Saprunov E. / Underwater in situ gamma spectrometers based on Nal(TI) and Srl2(Eu2+) scintillators: comparison, temperature dependences, methods of temperature stabilization of spectra // VII Конгресс физиков Беларуси (26–28 апреля 2023 г.): Сборник науч. трудов. / редкол.: Д.С. Могилевцев (гл. ред.) [и др.].– Минск, 2023. С. 31–32.